

声致发光单泡的 Mie 散射测量参数的理论计算 *

葛曹燕 钱梦碌 李同保

(同济大学声学研究所 上海 200092)

2001 年 7 月 16 日收到

摘要 本文运用 Mie 散射理论系统地计算了适用于声致发光单泡的 Mie 散射测量参数。利用 Dave 倒推算法得出散射光强随半径及散射角的变化曲线 $I(R)$ 、 $I(\theta)$ ，结果表明：适合于连续 Mie 散射测量、脉冲 Mie 散射测量及 Mie 散射定标的散射角及接收器张角是各不相同的。文中给出了合适的参数范围。

关键词 声致发光单泡, Mie 散射, Dave 倒推算法

Calculation of Mie scattering parameters for sonoluminescing single bubble

GE Caoyan QIAN Menglu LI Tongbao

(Institute of Acoustic, Tongji University, Shanghai 200092)

Abstract A detailed Mie scattering calculation was performed to determine the proper parameters of Mie scattering experiments and calibrations for sonoluminescing single bubble measurement. The results indicate that parameters, mainly the scattering angles and the receiving angles of the detecting aperture, should be changed as the mode of the incident laser alters from continuous to pulse in the experiments.

Key words Sonoluminescing single bubble, Mie scattering, Dave downward recurrence algorithm

1 引言

Mie 散射理论是将 Lorenz 电磁理论运用于测量微小半径粒子尺度、研究小物体的吸收和散射特性的经典理论。自 1907 年 Gastav Mie^[1]首次提出这一理论后，人们开展了它在天文、

气象、粉体测量等众多领域的应用研究，国内外很多学者相继提出了日臻完善的 Mie 算法^[1-4]。

进入 90 年代以来，单泡声致发光(SBSL)引起了人们的广泛兴趣，也为 Mie 散射带来了新的应用。SBSL 是指一个悬浮于流体驻波声

* 国家自然科学基金(19934001)和教育部博士点基金资助项目

场中的气泡在声场压强作用下周期性振荡, 崩溃, 同时发出超短脉冲光的现象。一方面, 精确测量气泡的动力学特性, 尤其是半径—时间关系($R(t)$ 曲线), 对研究气泡状态, 检验发光机理具有重要意义; 另一方面, 由于气泡运动的时间和空间参数的跨度都很大, 即吸收声场能量的时间超过 $10\mu\text{s}$ 而崩溃过程不足 1ns , 最大半径为数十 μm , 最小半径却不足 $1\mu\text{m}$ ^[5], 使得实验测定气泡半径相当困难。因而, 具有动态测量特性的 Mie 散射成为公认的测量 $R(t)$ 曲线最灵活有效的方法之一。

但是, 由于 Mie 散射是各向异性的, 处在不同散射角, 使用不同张角的光电检测器测量到的单泡散射光强随时间的变化曲线 $I(t)$ 各不相同。因此, 有必要深入开展 Mie 散射的理论研究, 寻找更适合于实验和校准的检测位置, 从而精确测量 SBSL 的 $R(t)$ 曲线。为此本文将较为系统地计算 SBSL 条件下的 Mie 散射特征曲线, 并由此探讨合适的 Mie 散射实验参数。

2 Mie 散射计算公式

如图(1)所示, 半径为 R 的球形颗粒中心位于坐标原点 O , 波长为 λ 、强度为 I_0 的线偏振光沿 z 轴入射, 散射光线 OP 与入射方向 z 轴的夹角 θ 为散射角, 散射平面(散射光线与入射光线所在平面)在平面 xoy 的投影 Op' 与 x 轴的夹角 ϕ 为极化角。

距气泡中心 r 处的散射强度为^[1]:

$$I_{\text{sca}} = I_0 \frac{\lambda^2}{4\pi r^2} I(\theta, \phi) \quad (1)$$

其中与角度相关的相对散射强度:

$$\begin{aligned} I(\theta, \phi) &= I_1 \sin^2 \phi + I_2 \cos^2 \phi \\ &= |S_1(\theta)|^2 \sin^2 \phi \\ &\quad + |S_2(\theta)|^2 \cos^2 \phi \end{aligned} \quad (2)$$

式中 S_1 、 S_2 为幅值函数, 具有无穷级数的形式:

$$S_1(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} [a_n \pi_n(\cos \theta) + b_n \tau_n(\cos \theta)] \quad (3a)$$

$$S_2(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} [a_n \tau_n(\cos \theta) + b_n \pi_n(\cos \theta)] \quad (3b)$$

其中 a_n 、 b_n 为散射系数, 它们具有与尺度参数 $a = 2\pi R/\lambda$ 和折射率比 $m = n_1/n_2$ (散射物体折射率, n_2 : 媒质折射率) 相关的 Bessel 函数形式:

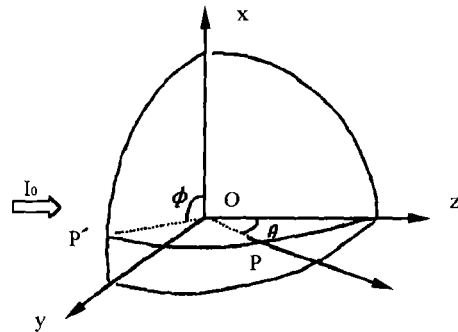


图1 Mie 散射几何示意图

$$a_n(\alpha, m, n) = \frac{[D_n(m\alpha)/m + n/\alpha]\varphi_n(\alpha) - \varphi_{n-1}(\alpha)}{[D_n(m\alpha)/m + n/\alpha]\xi_n(\alpha) - \xi_{n-1}(\alpha)} \quad (4a)$$

$$b_n(\alpha, m, n) = \frac{[D_n(m\alpha) + n/\alpha]\varphi_n(\alpha) - \varphi_{n-1}(\alpha)}{[D_n(m\alpha) + n/\alpha]\xi_n(\alpha) - \xi_{n-1}(\alpha)} \quad (4b)$$

式中

$$\begin{aligned} D_n(m\alpha) &= \varphi'_n(m\alpha)/\varphi_n(m\alpha) \\ \varphi_n(\alpha) &= \alpha J_n(\alpha) & \varphi'_n(\alpha) &= \frac{d}{d\alpha} \varphi_n(\alpha) \\ \xi_n(\alpha) &= \alpha J_n(\alpha) + i\alpha Y_n(\alpha) \end{aligned} \quad (5)$$

J_n 、 Y_n 分别为第一、第二类贝塞尔函数。而 (3a) 和 (3b) 式中的 π_n 、 τ_n 为角度函数, 具有与散射角 θ 相关的函数形式:

$$\pi_n(\cos \theta) = P'_n(\cos \theta) / \sin \theta \quad (6a)$$

$$\tau_n(\cos \theta) = \frac{dP'_n(\cos \theta)}{d\theta} \quad (6b)$$

式中 P_n 是 Legendre 函数, $P'_n(x) = dP_n(x)/dx$ 。

这样, 对于已知尺度参数 α 和折射率比 m 的情况, 就可以运用以上各式数值计算出点 $P(r, \theta, \phi)$ 处的散射光强了。

3 数值计算程序及相关参数

数值计算以 He-Ne 激光器作光源, 波长 $\lambda = 632.8\text{nm}$, SBSL 的尺度参数 $\alpha = 2\pi R/\lambda$ 在 $(1 - 10^4)$ 范围内, 假设气泡内气体折射率 $n_1 = 1.0$, 水折射率 $n = 1.33$, 折射率比 m 的虚部为零。为了简化模型, 我们作了以下假设:

- (1) 气泡在运动周期内始终保持球对称;
- (2) 泡内气体及水的折射率不变;
- (3) 入射激光垂直线偏, 即极化角 $\phi = 90^\circ$ 。

因此, 不计光电检测器张角时, 由于 $\phi = 90^\circ$, 散射光强可简化为:

$$I_{sca} = I_0 \frac{\lambda^2}{4\pi r^2} I_1(\theta)$$

$$= I_0 \frac{\lambda^2}{4\pi r^2} |S_1(\theta)|^2 \quad (7)$$

如果计入光电检测器张角 θ_0 , 如图 2 所示, A 为接收面圆中心, CD 为该圆面与平面

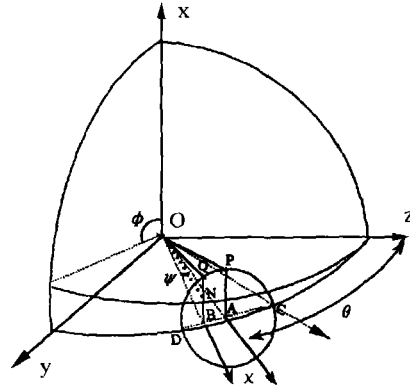


图 2 计入检测器张角的几何示意图

yo z 的交线, 则 $\angle COA = \angle DOA = \theta_0$ 。P、Q 为圆周上两点, 满足直线 PA、QB 均垂直于平面 yo z , 交 CD 于 A、B 两点。N 为 QB 上任意一点, 设 $\chi \in (-\theta_0, \theta_0)$ 为散射角 θ 的增量, 则 N 点的散射角为 $\theta + \chi$ 。计球坐标中矢径 ON 的极化角为 ϕ , 它与平面 yo z 的夹角 $\angle NOB = \psi$, 几何关系显示 $\pi/2 - \phi = \psi / \sin(\theta + \chi)$ 。由球面的面元 $ds = r^2 \cos \psi d\psi d\chi$, 结合 (1)、(2) 式, 入射到光电检测器的光功率为:

$$\begin{aligned} W_{sca} &= I_0 \frac{\lambda^2}{4\pi r^2} r^2 \int_{-\theta_0}^{\theta_0} d\chi \int_{-\psi_0}^{\psi_0} d\psi \cdot I\left(\theta + \chi, \frac{\pi}{2} - \frac{\psi}{\sin(\theta + \chi)}\right) \cos \psi \\ &= I_0 \frac{\lambda^2}{4\pi} \left[\int_{-\theta_0}^{\theta_0} I_1(\theta + \chi) d\chi \int_{-\psi_0}^{\psi_0} \sin^2\left(\frac{\pi}{2} - \frac{\psi}{\sin(\theta + \chi)}\right) \cos \psi d\psi \right. \\ &\quad \left. + \int_{-\theta_0}^{\theta_0} I_2(\theta + \chi) d\chi \int_{-\psi_0}^{\psi_0} \cos^2\left(\frac{\pi}{2} - \frac{\psi}{\sin(\theta + \chi)}\right) \cos \psi d\psi \right] \quad (8) \end{aligned}$$

其中 ψ_0 角为经过检测器圆面边缘的散射光线与 yo z 面的夹角, 即图示 $\angle QOB$ 。由于 $\angle POA$ 与检测器张角 θ_0 相等, 由球体内的简

单几何关系可知:

$$\sin \psi_0 = \sqrt{1 - (\cos \theta_0 / \cos \chi)^2} \quad (9)$$

运用三角关系式: $\cos^2(\frac{\psi}{\sin(\theta+\chi)}) = 1 - \sin^2(\frac{\psi}{\sin(\theta+\chi)})$, 化简 (8) 式, 并略去二阶小量 $\sin^2(\frac{\psi}{\sin(\theta+\chi)})$, 即得: $W_{sca} = I_0 \frac{\lambda^2}{4\pi} 2 \int_{-\theta_0}^{\theta_0} I_1(\theta + \chi) d\chi \sin \psi_0$ 。将 (9) 式代入其中, 得到光电检测器张角为 θ_0 时的散射光功率:

$$W_{sca} = I_0 \frac{\lambda^2}{4\pi} 2 \int_{-\theta_0}^{\theta_0} I_0(\theta + \chi) \cdot \sqrt{1 - (\cos \theta_0 / \cos \chi)^2} d\chi \quad (10)$$

由于 Mie 计算参数范围较小, 不易产生误差积累, 因而数值计算时选用 Dave 的倒推算法^[1]。Dave 倒推算法的核心是计算 (5) 式中 $D_n(m\alpha)$ 。 $D_n(m\alpha)$ 具有很强的收敛性, 且当 $n \rightarrow \infty$ 时, $D_n(m\alpha) \rightarrow 0$ 。所以可以选取合适的倒推起点 N_{stop} , 使其对应的 $D_n(m\alpha)$ 为零, 再利用 Dave 倒推式

$$D_{n-1}(m\alpha) = \frac{n}{m\alpha} - \frac{1}{[n/m\alpha + D_n(m\alpha)]} \quad (11)$$

计算 $n < N_{stop}$ 时的值, 并将所有 $D_n(m\alpha)$ 值事先保存为数组以备调用。本算法选取 $N_{stop} = \alpha + \alpha^{1/3} + 2$, 以便同时保证函数的完全收敛和尽可能缩短计算时间。而数组 $\varphi_n(\alpha)$ 、 $\xi_n(\alpha)$ 的计算则完全运用贝塞尔函数 J_n 、 Y_n 的初值及递推关系式由低次 $n = 0$ 前推

$$\begin{aligned} \xi_{-1}(\alpha) &= \cos \alpha - i \sin \alpha \\ \xi_0(\alpha) &= \sin \alpha - i \cos \alpha \\ \xi_{n-1} &= \frac{2n+1}{\alpha} \xi_n - \xi_{n+1} \\ \varphi_n(\alpha) &= \text{Re}[\xi_n(\alpha)] \end{aligned} \quad (12)$$

其中 Re 表示取实部。这样, 对应每一个 n , $D_n(m\alpha)$ 、 $\xi_n(\alpha)$ 、 $\phi_n(\alpha)$ 均可计算得到, 代入 (4a)、(4b) 式即可求出 a_n 、 b_n 。类似的, 运用 Legendre 函数的初值及递推关系可以前推出 (6a)、(6b) 式中 π_n 和 τ_n 的值, 代入 (3a)、(3b)、(7)、(10) 式即可求出相应的散射

光强或光功率。下文在不考虑检测器张角时, 将相对散射光强记为 $(I_{sca}/I_0) \cdot (4\pi^2 r^2 / \lambda^2)$, 即 (7) 式中的 $I_1(\theta)$; 而考虑张角时的相对散射光功率则记为 $(W_{sca}/I_0) \cdot (4\pi^2 / \lambda^2)$, 见 (10) 式。

4 结果与讨论

如前所述, 发光气泡在声场作用下周期性的由平衡半径 R_0 缓慢膨胀至最大半径 R_{max} , 然后迅速坍缩至最小半径 R_{min} , 接着反弹振动。由于气泡半径变化的空间跨度很大, 通常实验者进行 Mie 散射测量时, 在 $R(t)$ 曲线的 R_0 - R_{max} 段采用连续光源照明, 并近似认为散射光强 I_{sca} 与 $R^2(t)$ 成正比, 同时用图象测量给出气泡半径的绝对值; 在 R_0 - R_{min} 区域则通过声光调制的脉冲光来照明 Mie 散射测量, 并用严格的 Mie 散射理论给出测量修正^[5]。图 3 是 Mie 散射的典型装置, 光电倍增管 PMT1 用于接收气泡的散射光, PMT2 则用来接收气泡崩溃时的 SL 闪光, 作为数字示波器的触发信号。本文下面来讨论通过 Mie 散射计算, 如何确定不同精度 Mie 散射实验最合适的散射角及 PMT 张角。

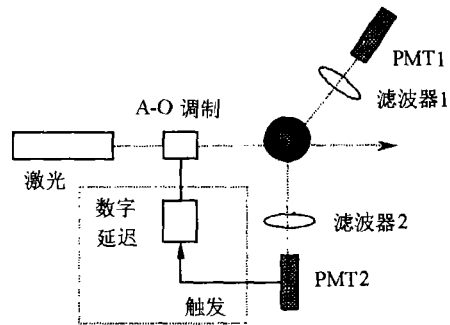


图 3 Mie 散射实验装置

4.1 散射角

在经典几何光学中, 某一固定散射角的散射光强 I_{sca} 与 $R^2(t)$ 成正比^[6]。但是 Mie 计算表明, Mie 散射强度强烈的依赖于散射角

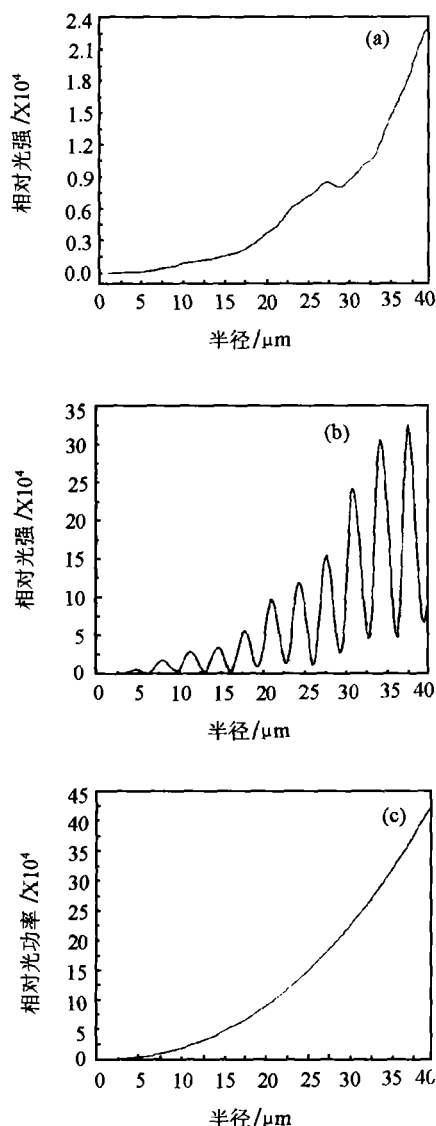


图 4 按 Mie 散射理论计算不同散射角处的相对散射光强或光功率

(a) $\theta = 80^\circ$ $\Delta\theta = 0^\circ$ (b) $\theta = 25^\circ$ $\Delta\theta = 0^\circ$
(c) $\theta = 80^\circ$ $\Delta\theta = 5^\circ$

θ ，不同散射角对应的 $I(R)$ 曲线的平滑度差异很大：仅在 80° 附近散射光强随气泡半径平滑上升，其余散射角的 $I(R)$ 曲线都有不同程度的起伏振荡^[7]。图 4(a)、4(b) 分别显示了 $\theta = 80^\circ$ 和 $\theta = 25^\circ$ 的 $I(R)$ 曲线，显然 $\theta = 80^\circ$ 时的曲线比较接近 $I \propto R^2(t)$ 关系。计入 5° 检测器张角，曲线更趋平滑，如图 4(c) 所示。经

数据拟合，图 4(c) 相对散射光功率 W_{relative} 与散射气泡半径 R 的经验公式为：

$$W_{\text{relative}} = 89.90 \cdot R^{2.289} \quad (13)$$

系数和指数的经验误差分别为 0.799% 、 0.252% 。

为了作出进一步的解释和比较，我们分别按 Mie 理论及经典几何光学路径计算了固定气泡半径下的 $I(\theta)$ 曲线。在经典几何光学中，球状气泡对水平入射的光线进行多次反射、折射，最后入射到距离球泡中心 r 处的散射光强为 $I_{\text{sca}} = I_0^*(R^2/r^2)*G$ ， G 为散射角的单值函数^[6]。如图 5 所示，半径为 $20\mu\text{m}$ 的气泡，其 Mie 散射曲线 $I(\theta)$ 在对数坐标中呈现许多衍射峰，但总体趋势与粗线所示按几何光学路径的计算值保持一致，这说明 Mie 散射总体上是近似满足 $I \propto R^2(t)$ 关系的。Mie 散射光强在 80° 附近变化平缓，与半径呈现较好的一一对应关系，正是由于此时几何光学在 $I \propto R^2(t)$ 关系中起了主导作用，许多实验选取 80° 作为连续 Mie 散射的散射角，就是取 $I-R$ 的这种对应关系。

但是，从图 5 我们可以同时看出，Mie 散射前向散射强度远大于后向散射强度。在进行脉冲 Mie 散射测量时，气泡半径相对较小，散射光强相对较弱，这时可考虑选取散射强度较大、 $I(R)$ 曲线起伏较小的 60° 作为散射角，

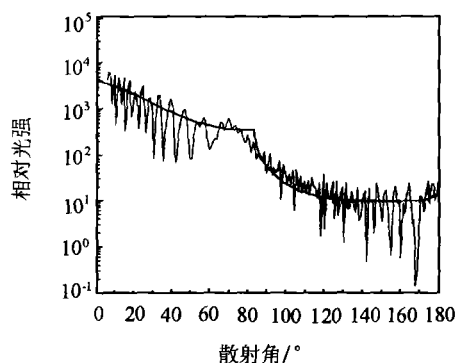


图 5 半径为 $20\mu\text{m}$ 的气泡在不同散射角上对入射光 ($\lambda = 632.8\mu\text{m}$) 的相对散射强度。粗线表示按几何光学路径计算得到的气泡散射强度

以提高光电接收器的信噪比^[8]。图6给出了一些不同半径下的 $I(\theta)$ 曲线。显然,用连续光Mie散射测量半径 R 大于环境半径 R_0 的气泡时,80°是一个理想的散射角;而对 $R < R_0$ 的小气泡而言,60°似乎更加合适。除此之外,散射光强在 $\theta = 25^\circ$ 左右出现一个强峰,但是由于此时的 $I(R)$ 曲线起伏很大,背景散射又很强,因而较少选用。

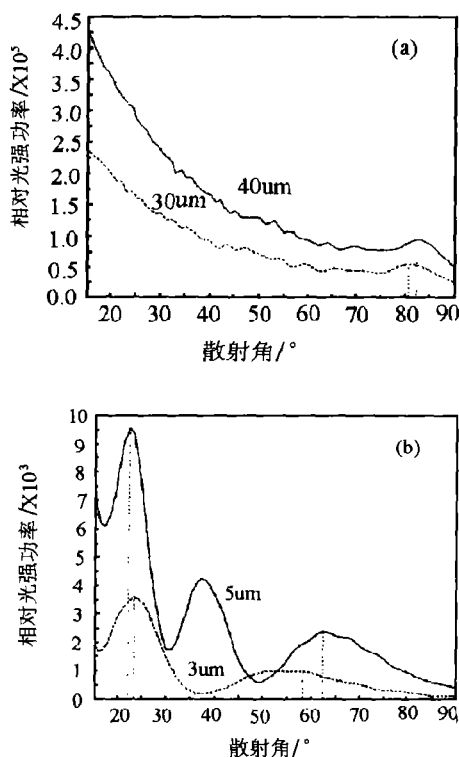


图6 对应不同气泡半径,相对散射光功率($\Delta\theta = 5^\circ$)在不同散射角处呈现峰值
(a) $R > R_0$ (b) $R < R_0$

4.2 PMT 张角

图7是散射角为50°时,光电倍增管PMT张角分别为1°、3°、5°时的 $W(R)$ 曲线,可以看出,PMT张角越大,曲线越平滑,检测器接收的光功率越大。这是显见的:由于 $I(\theta)$ 曲线的起伏不定,对于同一半径,Mie散射在相邻角度的散射光强差异很大,3°张角相当

于取(47°, 53°)内所有角度的散射光强之和,既平滑了单一角度 $I(R)$ 曲线的起伏,又增大了检测器的输入信号。对于单一角度较为平滑的80°而言,检测器张角对其影响主要表现在输入信号的强度上,对 $W(R)$ 曲线的起伏性影响较小。

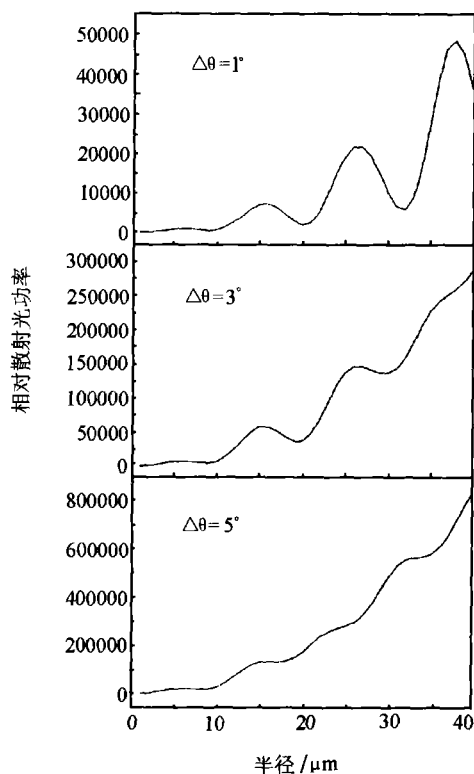


图7 散射角为50°时,对应不同检测器张角的 $W_{relative}(R)$ 曲线

由于PMT输出的是电压—时间关系,要将其转化成对应的光功率—时间关系,即 $W(t)$ 曲线,并与理论计算的 $W(R)$ 曲线比较,最终得出 $R(t)$ 曲线,必须对背景散射、测量系统等进行校准。可以首先在Mie散射测量的同一角度上检测接收器的背景信号,在后续测量中减去这一信号,去除背景散射。也可利用小角度时 $W(R)$ 曲线的起伏特性,选取多散射角同时标定输出电压与散射光功率的对应关系^[9]。如图8,在检测器张角为3°,散射角 θ 分别为

46°、53° 时, 气泡的散射光功率随半径变化呈现出交替变化。值得注意的是, 在 $R = 24\mu\text{m}$ 处, 两个条曲线同时达到某一极小值, 利用实验曲线 $V(t)$ 中类似的关系即可找出 $R = 24\mu\text{m}$ 对应的时间 t , 从而实现 Mie 散射对半径 R 的绝对定标。进一步计算结果表明: 对于类似的 Mie 散射定标, 取 (40°, 60°) 范围内的散射角是比较适宜的。

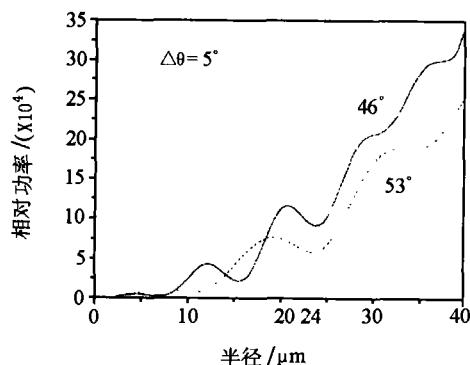


图 8 散射角分别为 46° 和 53° 时, 散射光功率随半径的变化曲线

因此, 对于散射角 θ 较大的 Mie 散射测量和 θ 较小的 Mie 散射定标, 接收器的张角宜取不同大小。 θ 较大, 单一角度的散射光强较小, 大的张角 (5° 以上) 有利于增强 PMT 的接收信号; θ 较小, 张角也应取较小值, 因为大的张角会破坏 $W(R)$ 曲线的起伏特性, 从而失去其定标的意义。

5 结论

利用倒推算法, 根据散射理论计算了极化角为 90° 时, 不同散射角上的散射光强随气泡半径变化的关系曲线 $I(R)$; 以及固定散射角时, 不同检测器张角下的 $W(R)$ 曲线。这些计算结果表明: Mie 散射光强对散射角及接收器张角十分敏感。对于声致发光单泡而言, 80° 左右的散射角和 5° 以上的接收器张角适用于连续 Mie 散射测量, 60° 左右散射角则适用于脉冲 Mie 散射测量; Mie 散射定标可选取 (40°, 60°) 范围内的散射角, 此时应适当拉开接收器和气泡的距离, 减小张角。

参 考 文 献

- 1 Bohren C F, Huffman D R. Absorption and Scattering of Light by Small Particles. New York: Wiley, 1983: 82-113, 126-129, 475-482.
- 2 余其铮, 马国强, 刘晓彦. 哈尔滨工业大学学报, 1987, (3): 21-26.
- 3 王式民, 朱震. 计量学报, 1999, 20: 279-283.
- 4 Wiscombe W J. Appl.Opt., 1980, 19(9): 1505-1509.
- 5 Barber B P, Hiller R A. Phys.Reports., 1997, 281 : 65-143.
- 6 Davis G E. J.Opt.Soc.Am., 1955, 45(7): 572-581.
- 7 Lentz W J, Atchley A A, Gaiten D F. Appl.Opt., 1995, 34(15): 2648-2654.
- 8 Weninger K R, Evans P G, Putterman S J. Phys.Rev.E, 2000, 61(2): 1020-1023.
- 9 Gary M, Hansen. Appl.Opt., 1985, 24(19): 3214-3220.